

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2002-255518

(43)Date of publication of application : 11.09.2002

(51)Int.Cl.

C01B 31/02

(21)Application number : 2001-054344

(71)Applicant : JAPAN ATOM ENERGY RES INST

(22)Date of filing : 28.02.2001

(72)Inventor : WATANABE SATOSHI

ISHIOKA NORIKO

SEKINE TOSHIAKI

CHO AKIHIKO

KOIZUMI MITSUO

MURAMATSU HISAKAZU

SHIMOMURA HARUHIKO

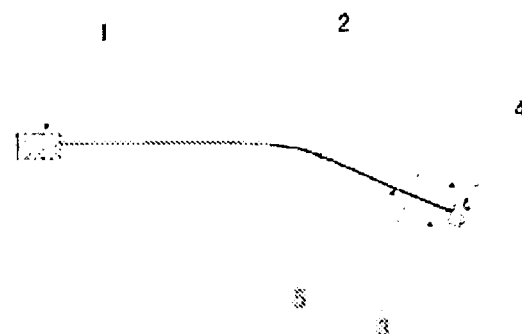
YOSHIKAWA HIROSUKE

(54) PRODUCTION METHOD FOR FULLERENE SELECTIVELY INCLUDING ISOTOPE ATOM BY ION IMPLANTATION METHOD

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a method by which a radioactive isotope is included into fullerene by an ion implantation method.

SOLUTION: The production method for fullerene including a specific isotope such as a radio active isotope is a method implanting the isotope using fullerene or a fullerene derivative as a target and an ion injector equipped with a mass spectrometry magnet.



\* NOTICES \*

JPO and INPIT are not responsible for any  
damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

---

CLAIMS

---

[Claim(s)]

[Claim 1]A manufacturing method of atomic intension fullerene targeting fullerene and a fullerene derivative and carrying out the ion implantation of the specific isotopes, such as radioisotope, using an ion-implantation machine equipped with a mass analysis magnet.

---

[Translation done.]

\* NOTICES \*

JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

## DETAILED DESCRIPTION

---

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention] This invention relates to making fullerene include radioisotope etc. Ion implantation is used in order to manufacture isotope intension fullerene.

[0002]

[Description of the Prior Art] As a manufacturing method of intension fullerene using ion implantation, alkali element intension fullerene (Tellgmann R. et al., Nature 382, and 407-408 (1996).), such as Li N intension fullerene (Weidinger A. et al., Appl. Phys. A 66, and 287-292) and (1998) helium, Ne intension fullerene (Shimshi R. et al., J. Am. Chem. Soc. 119, and 1163-1164) (1997) etc. are reported. These are all the manufacturing methods about non-isotope alternative intension fullerene. The manufacturing method of the fullerene which included Xe-127 which is a radioactive isotope of a xenon, The thing (Ohtsuki T. et al. and Physical Review Letters 81,967-970 (1998)) using the anti- $\gamma$  energy in a  $^{127}\text{I}(\text{d}, \text{two } n)^{127}\text{Xe}$  reaction is reported.

[0003] However, when a nuclear reaction is used, radioisotope intension fullerene other than the purpose may generate. The target isotope is included in a carbon rod electrode, and the method of manufacturing isotope intension fullerene by arc discharge process is reported (Ambe F., J. Radioanal. Nucl. Chem. 243, and 21-25 (2000)). However, various-sorts generation of the fullerene kind of metallofullerene made by this method cannot be carried out, and it cannot make intension fullerene of arbitrary fullerene kinds.

[0004]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] although the manufacturing method of Li by an ion implantation, N, helium, and Ne intension fullerene is reported as a Prior art -- these -- all -- a non-isotope -- it is alternative. Although the manufacturing method of radioisotope intension fullerene using a nuclear reaction is reported, isotope intension fullerene other than the purpose cannot generate, and single isotope intension fullerene cannot be made.

[0005]Although the manufacturing method of isotope intension fullerene using arc discharge process is reported, This cannot generate intension fullerene of arbitrary fullerene kinds (in addition to this, existence of many fullerene kinds is clear including fullerene derivatives, such as  $C_{60}$ ,  $C_{70}$ , and  $C_{82}$ ).

Then, this invention is originated in order to solve these problems.

[0006]

[Means for Solving the Problem]This invention can manufacture intension fullerene which does not contain any isotopes other than the purpose by using an ion-implantation machine in which an ion implantation of a single isotope is possible. Intension fullerene of arbitrary fullerene kinds can be manufactured from the ability of fullerene kinds arbitrary as a target of an ion implantation to be chosen.

[0007]

[Embodiment of the Invention]In order to carry out the ion implantation of the single isotope by this invention about an ion implantation with an ion-implantation machine, the ion-implantation machine (drawing 1) provided with the mass analysis magnet is used. The outline of the ion-implantation machine is shown below. The target 4 is installed in the target chamber 3 of an ion-implantation machine, and an ion implantation is performed in a vacuum. At this time, various ion generated by the ion source 1 is carried by the mass analysis magnet 2 as an ion beam. Since mass separation of an ion beam is performed here, the ion implantation only of the target isotope ion beam 5 is carried out to the target 4.

[0008]As a target of an ion implantation, arbitrary fullerene kinds also including a fullerene derivative are used about a target. The ion-implantation machine used by this invention is usually worked by 40 keV in order to carry out mass separation of the specific isotope, but since it is too high as incidence energy of isotope ion when manufacturing isotope intension fullerene, the ion needs to be slowed down. Then, how [ two ] the retardation methods shown below differ are used.

(1) Mix fullerene and a moderator (powder, such as CsI) at an arbitrary rate, create the target of a pellet type, and perform the ion implantation of an isotope to this.

(2) Vapor-deposit fullerene to a metallic foil and create a thin film target. The slit which applied the voltage of + to the front face of this thin film target as a reduction gear is installed, and the ion implantation of an isotope is performed. Xe-133 which is radioisotope is mentioned as an example below, and the concrete example of this invention is shown.

[0009]

[Example]  $^{133}\text{Xe}$  gas 200 MBq was transported to the 3.8-l. sample cylinder by the vacuum line. The same cylinder was filled up also with the  $^{129}\text{Xe}$  enriched isotope of about  $3\text{ cm}^3$  as an index of the mass in mass separation. This cylinder was connected to the Nielsen type ion source of an ion-implantation machine, and the ion implantation of the  $^{133}\text{Xe}$  was carried out to the fullerene which is a target in 40 keV. The target was created by two kinds of methods. The 1st considered CsCl (0.8g) as the support, it carried out application-of-pressure molding of what mixed the fullerene ( $C_{60}$ ) of 50 mg,

and Csl of 18 mg, and produced the pellet (diameter 18 mm). the 2nd uses an evaporation apparatus -- Ni foils (25x25 mm) -- fullerene ( $C_{60}$ ) -- about -- that of which 1.5 mum vacuum evaporation was done was targeted. When using this Ni-foils evaporation target, the slit which applied the voltage of + to the front face of a target as a reduction gear was installed, and 0.5 - 3 keV was made to slow down  $^{133}\text{Xe}^+$  ion. These targets were dissolved in o-dichlorobenzene after the ion implantation, and high performance chromatography (HPLC) analyzed fullerene. The eluate was isolated preparatively and the radioactivity of Xe-133 was measured. Since the peak of the fullerene by HPLC and the peak of Xe-133 in an eluate were in agreement, it was checked that Xe-133 intension fullerene is generating. The rate of the radioactivity of Xe-133 included by the fullerene to the radioactivity of all the Xe-133 by which the ion implantation was carried out to the target was computed as capture probability.

[Equation 1]

$$\text{捕獲確率(\%)} = \frac{\text{Xe-133 内包フラーレンの放射能}}{\text{ターゲットにイオン注入されたXe-133の放射能}} \times 100$$

When the pellet created on the conditions mentioned above was used, capture probability showed the maximum (0.28%) at the present stage. Isolation of the Xe-133 intension fullerene from the fullerene which is a target, It is theoretically possible by using HPLC (DiCamillo B. A. et al., J. Phys. Chem. 100 (22), and 9197-9201 (2000)). Although the example of the ion implantation of Xe-133 was shown here, if it is an ionizable isotope, all the isotope intension fullerene of them can be theoretically made using this invention.

[0010]

[Effect of the Invention]By this invention, the isotope intension fullerene of arbitrary fullerene kinds can be made, excluding any isotopes other than the purpose. The created isotope intension fullerene may be use by nuclear medicine. It is thought that it can be used as a remedy of cancer if Xe-133 intension fullerene is changed into a chemical form which gather for cancer, since Xe-133 of an example is a beta<sup>-</sup> line emission nuclide.

---

[Translation done.]

\* NOTICES \*

JPO and INPIT are not responsible for any  
damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

---

DESCRIPTION OF DRAWINGS

---

[Brief Description of the Drawings]

[Drawing 1]It is a figure showing the ion-implantation machine for manufacturing isotope intension fullerene.

[Description of Notations]

- 1 ..... Ion source
- 2 ..... Mass analysis magnet
- 3 ..... Target chamber
- 4 ..... Target
- 5 ..... The target isotope ion beam

---

[Translation done.]

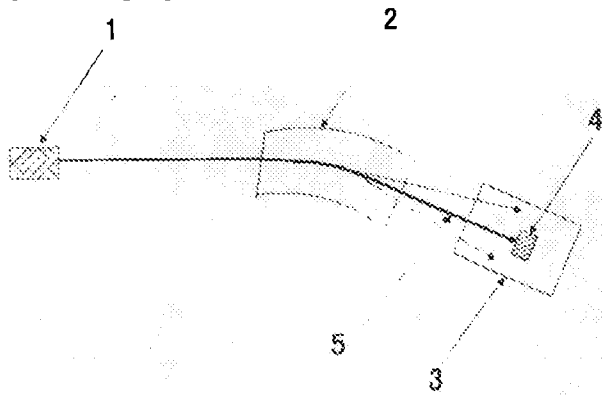
**\* NOTICES \***

JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

**DRAWINGS**

[Drawing 1]



[Translation done.]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号  
特開2002-255518  
(P2002-255518A)

(43) 公開日 平成14年9月11日 (2002.9)

(51) Int. Cl.

識別記号

F I

7-73-1 (参)

C 0 1 B 31/02

1 0 1

C 0 1 B 31/02

1 0 1 F 4 G 0 4 6

審査請求 未請求 請求項の数 1 O L (全 3)

(21) 出願番号 特願2001-54344 (P2001-54344)

(22) 出願日 平成13年2月28日 (2001.2.28)

特許法第30条第1項適用申請有り 平成12年9月12日  
日本放射化学会発行の「日本放射化学会誌 第1巻別冊  
2」に発表(71) 出願人 000004037  
日本原子力研究所  
東京都千代田区内幸町2丁目2番2号(72) 発明者 渡辺 智  
群馬県高崎市綿貫町1233番地 日本原  
研究所高崎研究所内(72) 発明者 石岡 典子  
群馬県高崎市綿貫町1233番地 日本原  
研究所高崎研究所内(74) 代理人 100399705  
弁理士 社本 一夫 (外5名)

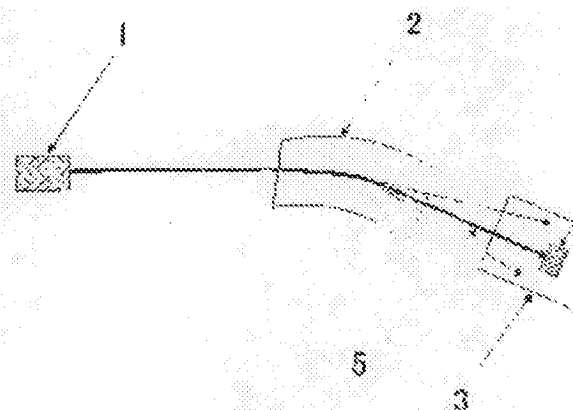
最終頁に

(54) 【発明の名称】 イオン注入法による同位元素選択的原子内包フラーレンの製造方法

(57) 【要約】

【課題】 イオン注入法により放射性同位元素等をフラーレンに内包させることに関する。

【解決手段】 質量分析マグネットを装備したイオン注入器を用い、フラーレンおよびフラーレン誘導体をターゲットとして放射性同位元素等の特定同位元素をイオン注入する原子内包フラーレンの製造方法。





(2)

特開2002-2555

1

2

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 質量分析マグネットを装備したイオン注入器を用い、フラーレンおよびフラーレン誘導体をターゲットとして放射性同位元素等の特定同位元素をイオン注入することを特徴とする原子内包フラーレンの製造方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】この発明は、放射性同位元素等をフラーレンに内包させることに関するものであり、同位元素内包フラーレンを製造するためにイオン注入法を用いることを特徴とするものである。

## 【0002】

【従来の技術】イオン注入法を用いた内包フラーレンの製造方法としては、Li等のアルカリ元素内包フラーレン（Tellmann R. et al., Nature 382, 407-408 (1996)）、N内包フラーレン（Weidinger A. et al., Appl. Phys. A 66, 287-292 (1998)）およびHe、Ne内包フラーレン（Shimshi R. et al., J. Am. Chem. Soc. 119, 1163-1164 (1997)）などが報告されている。これらすべて、非同位元素選択的内包フラーレンに関する製造方法である。また、キセノンの放射性同位体であるXe-127を内包したフラーレンの製造方法は、<sup>133</sup>I(d, 2n) <sup>133</sup>Xe反応における反核エネルギーを利用したもの（Ohtsuka T. et al., Physical Review Letters 81, 967-970 (1998)）が報告されている。

【0003】しかし、核反応を用いた場合、目的以外の放射性同位元素内包フラーレンが生成する可能性がある。さらに、目的の同位元素を炭素管電極に含ませておき、アーク放電法により同位元素内包フラーレンを製造する方法が報告されている（Ambe F., J. Radioanal. Nucl. Chem. 243, 21-25 (2000)）。しかし、この方法で作られた金属内包フラーレンのフラーレン種は、多相生成してしまい、任意のフラーレン種の内包フラーレンを作ることができない。

## 【0004】

【発明が解決しようとする課題】従来の技術として、イオン注入によるLi、N、HeおよびNe内包フラーレンの製造方法が報告されているが、これらすべて非同位元素選択的なものである。また、核反応を用いた放射性同位元素内包フラーレンの製造方法が報告されているが、目

## 【0006】

【課題を解決するための手段】本発明は、単一の元素のイオン注入が可能なイオン注入器を用いることにより、目的以外の同位元素を含まない内包フラーレンを製造できる。さらに、イオン注入のターゲットとしてのフラーレン種を選べることから、任意のフラーレンの内包フラーレンを製造することができる。

## 【0007】

【発明の実施の形態】イオン注入器によるイオン注入について

本発明では、単一の同位元素をイオン注入する質量分析マグネットを備えたイオン注入器（図1）を用いる。以下にそのイオン注入器の概要を示す。イオン注入器のターゲットチャンバー4中にターゲット4を真空状態でイオン注入を行う。このとき、イオン生成された種々のイオンはイオンビームとして質量マグネット3に運ばれる。ここでイオンビームの分離が行われるため、ターゲット4には目的の同位イオンビームだけがイオン注入される。

## 【0008】ターゲットについて

イオン注入のターゲットとしては、フラーレン誘導体で任意のフラーレン種を用いる。また、本発明のイオン注入器は特定の同位元素を質量分離するため、通常40 keVで稼働させるが、同位元素内包フラーレンを製造する上で、同位元素イオンの入射エネルギーが高すぎるため、そのイオンの減速が必要で、そこで、以下に示す減速法の異なる2つの方法を用いる。

（1）フラーレンと減速材（CsI等の粉末）を任意割合で混合してペレット状のターゲットを作成し、同位元素のイオン注入を行う。

（2）金属箱にフラーレンを蒸着して薄膜ターゲットを作成する。この薄膜ターゲットの前面に減速装置の電圧をかけたスリットを設置して同位元素の注入を行う。以下に放射性同位元素であるXe-127にあげ、本発明の具体的な実施例を示す。

## 【0009】

【実施例】<sup>133</sup>Xeガス200 MBqを真空ラインによりトリプル試料ポンプに移送した。質量分析における指標として約3 cm<sup>3</sup>の<sup>133</sup>Xe蒸留同位体も同じポンプした。このポンプをイオン注入器のWeiser型・

(3)

特開2002-2556

3

4

置して $^{133}\text{Xe}$ イオンを0.5~3 keVに減速させた。イオン注入後、これらのターゲットをo-ジクロロベンゼンに溶解し、高速液体クロマトグラフィー（HPLC）によりフラーレンを分析した。また、溶出液を分取して、 $\text{Xe-133}$ の放射能を測定した。HPLCによるフラーレンのピークと溶出液中の $\text{Xe-133}$ のピークが一致したことから、 $\text{Xe-133}$ 内包

\* 包フラーレンが生成していることが確認された。ターゲットにイオン注入されたすべての $\text{Xe-133}$ のに対するフラーレンに内包された $\text{Xe-133}$ の放射能を捕獲率として算出した。

【数1】

$$\text{捕獲率(\%)} = \frac{\text{Xe-133 内包フラーレンの放射能}}{\text{ターゲットにイオン注入されたXe-133の放射能}} \times 100$$

上述した条件で作成したペレットを用いた時の捕獲率は、現段階で最大値（0.28%）を示した。なお、ターゲットであるフラーレンからの $\text{Xe-133}$ 内包フラーレンの分離は HPLCを用いることにより (DiCarillo B. A. et al., J. Phys. Chem., 100(22), 9197-9201 (2000)) 原理的には可能である。また、ここでは $\text{Xe-133}$ のイオン注入の例を示したが、イオン化が可能な同位元素であれば、原理的にはそれらすべての同位元素内包フラーレンを本発明を用いて作ることができる。

【0016】

【発明の効果】本発明により、目的以外の同位元素を含まず、かつ任意のフラーレン種の同位元素内包フラーレンを作ることができる。さらに、作成した同位元素内包

\* フラーレンは核医学での利用の可能性もある。実  
10  $\text{Xe-133}$ は $\beta^-$ 線放出核種であるため、 $\text{Xe-133}$ 内包フラーレンを癌に集まるような化学形に変換すれば、癌薬として利用できると考えられる。

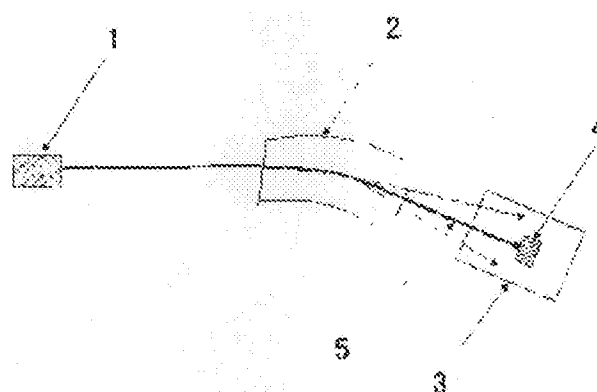
【図面の簡単な説明】

【図1】 同位元素内包フラーレンを製造する装置を示した図である。

【符号の説明】

- 1.....イオン源
- 2.....質量分析マグネット
- 3.....ターゲットチャンバー
- 4.....ターゲット
- 5.....目的の同位元素イオンビーム

【図1】



フロントページの続き

(72)発明者 関根 俊明

群馬県高崎市綿貫町1233番地 日本原子力

(72)発明者 村松 久和

長野県長野市大字西長野6の口 信